

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE

SERVICE  
de la PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

## BREVET D'INVENTION

P.V. n° 927.336

N° 1.349.843

Classification internationale : B 01 j — F 25 h



Installation pour la conduite de réactions chimiques.

Société dite : SHELL INTERNATIONALE RESEARCH MAATSCHAPPIJ N. V. résidant aux Pays-Bas.

Demandé le 8 mars 1963, à 15<sup>h</sup> 50<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré par arrêté du 9 décembre 1963.

(Bulletin officiel de la Propriété industrielle, n° 3 de 1964.)

(Demande de brevet déposée aux États-Unis d'Amérique le 8 mars 1962, sous le n° 178.355, aux noms de MM. Egerton Seitz ROBB, Jerry Gilbert MOFFETT Jr et Oran Lee WYLIE Jr.)

La présente invention concerne une installation pour la conduite de réactions chimiques consistant en un réacteur et un échangeur de chaleur tubulaire pour refroidir les produits de réaction.

L'invention concerne en particulier une installation dans laquelle le réacteur et l'échangeur de chaleur sont montés l'un par rapport à l'autre de façon que les produits de réaction sortant du réacteur soient presque immédiatement refroidis à une température à laquelle les réactions secondaires indésirables sont évitées. De telles réactions secondaires peuvent se produire, par exemple, durant l'oxydation ou l'oxydation partielle d'hydrocarbures, formant souvent des produits qui ne sont pas stables aux températures de réaction existantes. Un exemple particulier est la préparation de l'acroléine, dans laquelle un refroidissement rapide des produits de réaction résultants est souhaitable.

Selon l'invention, le but mentionné ci-dessus est atteint dans une installation du type mentionné dans le préambule, installation qui est caractérisée par la combinaison d'un récipient de réaction, garni d'un faisceau de tubes pour passage des milieux devant réagir et montés entre deux plaques tubulaires fixées à la paroi du réacteur, avec un échangeur de chaleur dont le faisceau de tubes de refroidissement est monté entre deux plaques tubulaires fixées au corps de l'échangeur de chaleur, la plaque tubulaire placée du côté sortie des tubes du réacteur et la plaque tubulaire placée du côté entrée des tubes de refroidissement étant situées à une faible distance et en face l'une de l'autre, et les tubes du réacteur et les tubes de refroidissement étant en communication entre eux par un espace relativement petit, fermé par ailleurs.

Une telle construction assure que les produits de réaction entrent dans les tubes d'échange de chaleur presque immédiatement après avoir laissé les tubes de réaction, car l'espace intermédiaire est

très petit, et, par conséquent, un temps très court seulement est nécessaire entre la sortie du réacteur et l'entrée dans l'échangeur de chaleur. Pour la production de l'acroléine, on utilise un réacteur du type mentionné ci-dessus; un mélange de propylène, de vapeur d'eau et d'oxygène est passé dans les tubes de réaction qui sont remplis d'un catalyseur convenable, par exemple de cuivre, les tubes formant ensemble un faisceau placé entre deux plaques tubulaires. Dans les installations connues, le courant de produits de réaction est d'abord recueilli dans une zone située entre la plaque tubulaire à l'extrémité sortie des tubes du réacteur et le couvercle d'extrémité du réacteur, et il est ensuite passé à un échangeur de chaleur séparé par une canalisation, et, dans ce cas, des réactions secondaires très nuisibles à la réaction peuvent se produire dans l'intervalle nécessaire entre le moment où les produits de réaction quittent les tubes de réaction et le moment où ces produits entrent dans les tubes de l'échangeur de chaleur. Cet intervalle de temps est assez long par suite du volume important entre la plaque tubulaire du côté sortie et le couvercle d'extrémité du réacteur, car ce couvercle d'extrémité est habituellement bombé, ceci étant nécessaire pour des raisons de construction, en particulier quand on utilise de hautes pressions.

De préférence, le réacteur et l'échangeur de chaleur consistent en récipients cylindriques étanches à la pression ayant un axe commun, tandis que l'échangeur de chaleur a un plus petit diamètre que le réacteur et est partiellement situé à l'intérieur du réacteur, le corps de l'échangeur de chaleur ayant été passé par une ouverture centrale dans le fond du réacteur et étant muni à cette ouverture d'une bride annulaire pour fixation au fond du réacteur.

On obtient ainsi une structure pratique et particulièrement compacte, capable de résister à de hau-

64 2191 0 73 061 1

Prix du fascicule : 2 francs

BEST AVAILABLE COPY

tes pressions, le temps nécessaire pour transférer les produits de réaction du côté sortie du réacteur au côté entrée de l'échangeur de chaleur étant réduit au minimum.

Dans beaucoup de cas, il sera nécessaire ou au moins avantageux que les tubes du réacteur soient remplis de particules solides de catalyseur et, dans ce cas, selon l'invention, une grille ou un tamis peut être disposé derrière la plaque tubulaire du côté sortie du réacteur, et fixé à la plaque tubulaire par une plaque de retenue ayant des ouvertures qui correspondent aux ouvertures de la plaque tubulaire.

L'espace de dimensions relativement petites situé entre la plaque tubulaire du côté sortie du réacteur et la plaque tubulaire du côté entrée de l'échangeur de chaleur est de préférence isolé de la partie inférieure du réacteur par une cloison annulaire contiguë à la paroi du réacteur du côté extérieur et fixée d'une façon étanche au corps de l'échangeur de chaleur du côté intérieur, la cloison consistant en plusieurs parties sensiblement en forme de segments qui sont reliés ensemble, et un moyen étant prévu pour centrer l'échangeur de chaleur.

Un avantage particulier de cette structure est que la cloison peut être formée d'une matière relativement légère, car il n'est pas nécessaire qu'elle soit étanche à la pression. Cette fonction est remplie en fait par le couvercle d'extrémité bombée du fond du réacteur auquel l'échangeur de chaleur est fixé au moyen d'une bride annulaire. Un autre avantage de la présente structure est que la cloison peut être introduite dans le réacteur en éléments séparés et montée en place.

Selon l'invention, l'entrée et la sortie du fluide de refroidissement de l'échangeur de chaleur se trouvent à l'extérieur du réacteur et sont reliées à un système de circulation, des moyens étant prévus pour contrôler la température moyenne de refroidissement dans l'échangeur de chaleur. Il est, en fait, particulièrement important de contrôler la température à laquelle le refroidissement est effectué. D'une part, on doit prendre soin que les produits de réaction soient refroidis aussi rapidement que possible à une température à laquelle il n'y a plus aucun risque que des réactions secondaires se produisent, mais, d'autre part, on doit prendre soin aussi que, au moins dans certains cas, le refroidissement ne soit pas poursuivi trop loin. C'est le cas, par exemple, si les produits de réaction sont en général gazeux et s'ils se condensent partiellement ou complètement comme conséquence du fait que le refroidissement est poussé trop loin. Dès que le point de rosée des gaz est dépassé, il existe le danger que les tubes d'échange de chaleur sont exposés à s'encrasser.

Quand le fluide de refroidissement choisi est un liquide qui s'évapore dans l'échangeur de chaleur,

comme l'eau, et quand, de plus, une pompe de circulation et aussi un récipient de séparation pour séparer le liquide et la vapeur sont inclus dans le système de circulation, la température de refroidissement dans l'échangeur de chaleur peut être contrôlée en réglant la pression dans le récipient de séparation. Ce contrôle peut être effectué au moyen d'un dispositif de commande de pression relié à un dispositif de mesure de la pression installé dans le récipient, et actionnant deux soupapes en fonction de la différence entre la pression mesurée et une valeur de réglage, l'une des soupapes étant placée dans une canalisation de jonction entre le récipient et un circuit de vapeur ou de vapeur d'eau haute pression, et l'autre dans une canalisation entre le récipient et un circuit de vapeur ou de vapeur d'eau basse pression.

Aux dessins annexés donnés à titre d'exemples non limitatifs, on a représenté une réalisation préférée de l'invention.

La figure 1 est une vue schématique en élévation d'une combinaison d'un réacteur et d'un échangeur de chaleur, en même temps que d'un moyen pour contrôler la température de refroidissement.

La figure 2 est une vue partielle en coupe, à plus grande échelle, d'une partie inférieure du récipient de réaction et de la partie supérieure de l'échangeur de chaleur.

La figure 3 est une coupe verticale de l'échangeur de chaleur, montrant le fond du réacteur.

La figure 4 est une coupe transversale suivant la ligne 1-1 de la figure 3.

Dans le mode de réalisation représenté sur la figure 1, le réacteur comprend un récipient sous pression 10 comportant des couvercles supérieur et inférieur bombés 11 et 12 et contenant des plaques tubulaires supérieure et inférieure 13 et 14 et plusieurs tubes de réaction 15, contenant chacun un catalyseur granulaire. Les plaques tubulaires sont espacées verticalement des couvercles d'extrémités pour des raisons de construction. Le couvercle supérieur 11 présente une entrée en 16 par laquelle une matière devant réagir provenant d'une source 9 est introduite pour écoulement dans les divers tubes. Ces tubes sont refroidis extérieurement par un fluide de refroidissement, tel qu'un liquide qui est vaporisé à la température de réaction, admis dans l'espace entre les plaques tubulaires par une entrée 17, et déchargé sous forme de vapeur par la sortie 18. Montée juste sous la plaque tubulaire inférieure, à une faible distance, se trouve une cloison 19 percée d'une ouverture centrale à laquelle est fixée l'extrémité supérieure du corps 20 d'un échangeur de chaleur à fluide de refroidissement, qui s'étend vers le bas par une ouverture dans le couvercle de fond 12 auquel il est relié d'une façon étanche, par exemple, comme on le voit sur la figure 3, par une bague 21 soudée

BEST AVAILABLE COPY

au corps 20 de l'échangeur et boulonnée à une bague correspondante 22 sur le couvercle. Le couvercle 12 présente un trou d'homme 12a normalement fermé.

Comme on le voit sur les figures 2 à 4, le corps de l'échangeur est ouvert au sommet et contient à son extrémité une plaque tubulaire supérieure 23 située à l'intérieur du récipient du réacteur près de la plaque tubulaire 14 du réacteur; il contient aussi une plaque tubulaire inférieure 24, située à l'extérieur du récipient. Un boîtier 25 est boulonné au fond du corps de l'échangeur pour délimiter une chambre de sortie. Des tubes de transfert de chaleur 26 s'étendent entre les plaques tubulaires 23 et 24 pour écoulement vers le bas de la matière ayant réagi dans la chambre de sortie, d'où elle est déchargée par une tubulure de sortie 27 et une soupape 28. Un orifice de purge 29 normalement fermé est prévu au fond. L'espace entre les plaques tubulaires contient avantageusement des chicanes transversales alternées 30 pour diriger l'écoulement du fluide de refroidissement, qui est admis au fond de cet espace par une entrée 31. Le fluide de refroidissement usé est déchargé par une sortie 32 comportant une purge normalement fermée 33. La sortie 32 et l'entrée 31 forment une première et une seconde voies de passage à travers le corps de l'échangeur, situées toutes deux à une certaine distance de la plaque tubulaire supérieure 23 de façon à se trouver à l'extérieur du récipient de réaction, c'est-à-dire au-dessous du couvercle 12. La dernière voie de passage est située près de la plaque tubulaire inférieure 24. La sortie 32 communique avec un conduit qui se trouve à l'intérieur du corps et est délimité en partie par une paroi 34 qui est fixée à la paroi du corps et en partie par cette paroi du corps elle-même. Ce conduit débouche près de la plaque tubulaire supérieure 23 pour recevoir le fluide de refroidissement usé. Pour permettre aux plaques tubulaires d'être fixées au corps tout en permettant une dilatation thermique différente, le corps comprend un renflement annulaire 35. Juste sous ce renflement, se trouve une entrée auxiliaire 36, qui peut être fermée et qui est prévue principalement pour extraction.

Revenant à la figure 1, dans un mode de mise en œuvre, le fluide de refroidissement pour l'échangeur est l'eau, envoyée à l'entrée 31 à partir d'un ballon de détente 37 par une pompe 38 et une canalisation 39, et l'eau est vaporisée dans l'échangeur. La vapeur d'eau, contenant souvent du liquide, est alors soutirée du voisinage de la plaque tubulaire supérieure 23 par le conduit formé par la paroi 34, la sortie 32 et une canalisation 40, et elle est admise tangentiellement au sommet du ballon 37. De l'eau d'appoint peut être introduite dans le ballon en 41. De la vapeur d'eau peut être déchargée du ballon ou admise dans le ballon par une canalisation 42

qui est reliée par une soupape 43 à une canalisation de décharge 44 de vapeur à basse pression et, par une soupape 45, à une source de vapeur à haute pression fournie par une canalisation 46. La canalisation 46 peut être reliée aussi à l'entrée 16 du réacteur par une canalisation de branchement 47 et une soupape 48 pour mélanger de la vapeur d'eau à la matière devant réagir qui entre dans le réacteur par la canalisation 9. Le ballon 37 contient un élément 49 sensible à la pression qui est relié à un dispositif 50 de commande de pression. Ce dernier émet un signal indicatif de la pression dans le ballon, par exemple une pression pneumatique, qui est transmis par un conduit 51 aux dispositifs 52 et 53 d'actionnement des soupapes. Ces dispositifs sont réglés de façon à ouvrir la soupape 43 et à décharger de la vapeur du ballon chaque fois que la pression dans le ballon dépasse une valeur prédéterminée, qui peut être réglée au dispositif de commande 50, et à ouvrir la soupape 45 pour laisser entrer de la vapeur provenant de la canalisation 46 chaque fois que la pression tombe au-dessous de cette valeur. Dans la pratique, les dispositifs d'actionnement sont réglés de façon qu'il y ait une petite plage de pressions pour lesquelles les deux soupapes sont fermées.

Revenant à la figure 2, il existe un tamis 54 maintenu sous la plaque tubulaire 14 du réacteur par une plaque de retenue 55 présentant des trous 56 en alignement avec les tubes du réacteur pour l'écoulement de la matière en réaction. Le rôle du tamis est de retenir le catalyseur granulaire à l'intérieur des tubes. La plaque de retenue est supportée à partir de la plaque tubulaire par des vis à tête 57 dans la zone centrale au-dessus du corps 20 de l'échangeur et par des goujons 58 dans la zone extérieure. Ces goujons servent aussi d'entretoises, comme on s'en rendra compte, et ils présentent des trous horizontaux 59 pour recevoir des coins (non représentés pour plus de clarté) par lesquels des rondelles 60 sont maintenues vers le haut contre la plaque 55.

La cloison 19 est composée de nombreux éléments, assez petits pour être introduits par l'ouverture centrale du couvercle 12 ou par le trou d'homme 12a. Ainsi, elle peut comprendre une série circonférentielle de plaques périphériques 61, comportant des rebords radiaux 62 par lesquels elles sont assemblées par soudage, et des bords extérieurs annulaires 63 auxquels sont fixées des vis de support 64 qui reposent sur une butée 65 sur le couvercle 12. Au bord radialement intérieur des plaques 61, se trouvent des rebords 66 orientés vers le bas portant des vis horizontales de réglage, qui sont montées dans des écrous soudés à l'intérieur des rebords, et fixées par des contre-écrous, comme on le voit. La zone annulaire entre le corps 20 et les rebords 66 est fermée par une plaque annu-

BEST AVAILABLE COPY

laire 68 (qui peut être formée aussi d'éléments pour permettre son introduction dans le récipient du réacteur) comportant un rebord 69 sur lequel appuient les vis 67 pour régler la position et centre la plaque 68 pendant le montage. La plaque 68 est maintenue à une certaine distance au-dessous de la plaque 55 par les goujons 58, auxquels elle est soudée en bouchon. De tels goujons et de telles soudures en bouchon sont prévus aussi au-dessus des plaques 61, mais ne sont pas représentés pour plus de clarté. Après réglage, les plaques 61 sont soudées à la plaque 68 comme on le voit en 70. Le rebord 69 est relié d'une façon étanche au corps 20 de l'échangeur par des bagues toriques 71 poussées vers le haut contre une bague de butée 72 par un gland 73 et des boulons 74.

En ce qui concerne les dimensions, on peut noter que la hauteur de la chambre à l'intérieur du couvercle 12 sous la cloison 19 peut être de 1,5 m environ, suffisante pour permettre à des ouvriers d'installer les éléments décrits; dans ce cas, l'espace entre la plaque 55 et les plaques 61 et 68 de la cloison, comme déterminé par les goujons-entretoises 58, est de 4 cm environ.

L'échangeur de chaleur peut être facilement fixé au réacteur et enlevé du réacteur, par exemple pour nettoyage. Pour enlever l'échangeur, on abaisse le gland 73 et on déboulonne la bague 21 de la bague 22.

En service, le courant de matière en réaction sortant des tubes 15 du réacteur s'écoule directement dans les tubes 26 de l'échangeur de chaleur, ou s'écoule radialement vers l'intérieur jusqu'à ces derniers par le mince espace au-dessus de la cloison 19. Ceci assure que le courant ayant réagi soit rapidement refroidi pour être amené à une température plus basse que la température de réaction.

Quand, comme dans la production de l'acroléine, le courant de matière ayant réagi est un courant de vapeurs et qu'un tel courant est susceptible d'encrasser les tubes de l'échangeur si on le refroidit à une température de condensation, il est préférable de régler la température de refroidissement à un niveau supérieur au point de rosée de ce courant.

#### RÉSUMÉ

L'invention concerne notamment :

1° Une installation pour la conduite de réactions chimiques consistant en un réacteur et un échangeur de chaleur tubulaire pour refroidir les produits de réaction, caractérisée par la combinaison d'un récipient de réaction, garni d'un faisceau de tubes pour passage des milieux devant réagir et montés entre deux plaques tubulaires fixées à la paroi du réacteur, avec un échangeur de chaleur dont le faisceau de tubes de refroidissement est monté entre deux plaques tubulaires fixées au corps

de l'échangeur de chaleur, la plaque tubulaire placée du côté sortie des tubes du réacteur et la plaque tubulaire placée du côté entrée des tubes de refroidissement étant situées à une faible distance et en face l'une de l'autre, et les tubes du réacteur et les tubes de refroidissement étant en communication entre eux par un espace relativement petit, fermé par ailleurs;

2° Des modes de réalisation présentant les particularités suivantes, prises séparément ou selon les diverses combinaisons possibles :

a. Le réacteur et l'échangeur de chaleur consistent en récipients cylindriques étanches à la pression ayant un axe commun, tandis que l'échangeur de chaleur a un plus petit diamètre que le réacteur et est partiellement situé à l'intérieur du réacteur, le corps de l'échangeur de chaleur ayant été passé par une ouverture centrale dans le fond du réacteur et étant muni à cette ouverture d'une bride annulaire pour fixation au fond du réacteur;

b. Les tubes du réacteur sont remplis de catalyseur solide et une grille ou un tamis est disposé derrière la plaque tubulaire du côté sortie, et fixé à la plaque tubulaire par une plaque de retenue ayant des ouvertures qui correspondent aux ouvertures de la plaque tubulaire;

c. Une cloison annulaire est montée dans le réacteur en face de la plaque tubulaire du côté sortie des produits de réaction, laquelle cloison est contiguë à la paroi du réacteur du côté extérieur et fixée d'une façon étanche au corps de l'échangeur de chaleur du côté intérieur, la cloison consistant en plusieurs parties sensiblement en forme de segments qui sont reliées ensemble, et un moyen étant prévu pour centrer l'échangeur de chaleur;

d. Au moins la partie de la plaque de retenue placée en face de la cloison est fixée à la plaque tubulaire par des goujons à fentes pour coins, des coins et un gland, les goujons servant aussi d'entretoises entre la plaque de retenue et la cloison;

e. La cloison est supportée sur la paroi du réacteur par des boulons réglables reposant sur des éléments de support fixés à cette paroi;

f. L'entrée et la sortie du fluide de refroidissement de l'échangeur de chaleur se trouvent à l'extérieur du réacteur et sont reliées à un système de circulation, des moyens étant prévus pour contrôler la température moyenne de refroidissement dans l'échangeur de chaleur;

g. La sortie de l'échangeur de chaleur est placée près de la bride d'assemblage avec le réacteur et communique à l'intérieur de l'échangeur de chaleur avec un conduit délimité par une partie de paroi formée par le corps et une partie de paroi recourbée en demi-cercle quand on la voit en coupe, ce conduit débouchant près de la plaque tubulaire du côté entrée de l'échangeur de chaleur;

h. Le fluide de refroidissement utilisé est un

BEST AVAILABLE COPY

liquide s'évaporant dans l'échangeur de chaleur, et le système de circulation comprend une pompe de circulation et un récipient de séparation pour séparer le liquide et la vapeur, la température de refroidissement dans l'échangeur de chaleur étant contrôlée en réglant la pression dans le récipient de séparation;

i. La pression dans le récipient de séparation est contrôlée par un dispositif de commande de pression, relié à un dispositif de mesure de la pression installé dans le récipient, et actionnant deux soupapes en fonction de la différence entre la pression mesurée et une valeur de réglage, l'une des soupapes étant placée dans une canalisation de

jonction entre le récipient de séparation et un circuit de vapeur à haute pression, et l'autre dans une canalisation entre le récipient de séparation et un circuit de vapeur à basse pression;

j. La partie du corps de l'échangeur de chaleur située à l'extérieur du réacteur comporte un renflement annulaire pour permettre la dilatation thermique des tubes de l'échangeur de chaleur en service.

Société dite : SHELL INTERNATIONALE  
RESEARCH MAATSCHAPPIJ N. V.

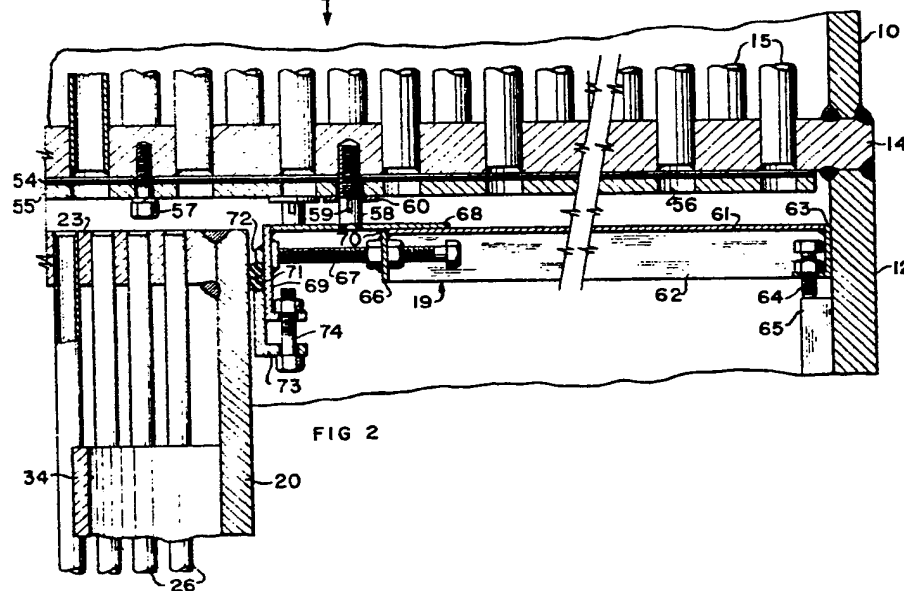
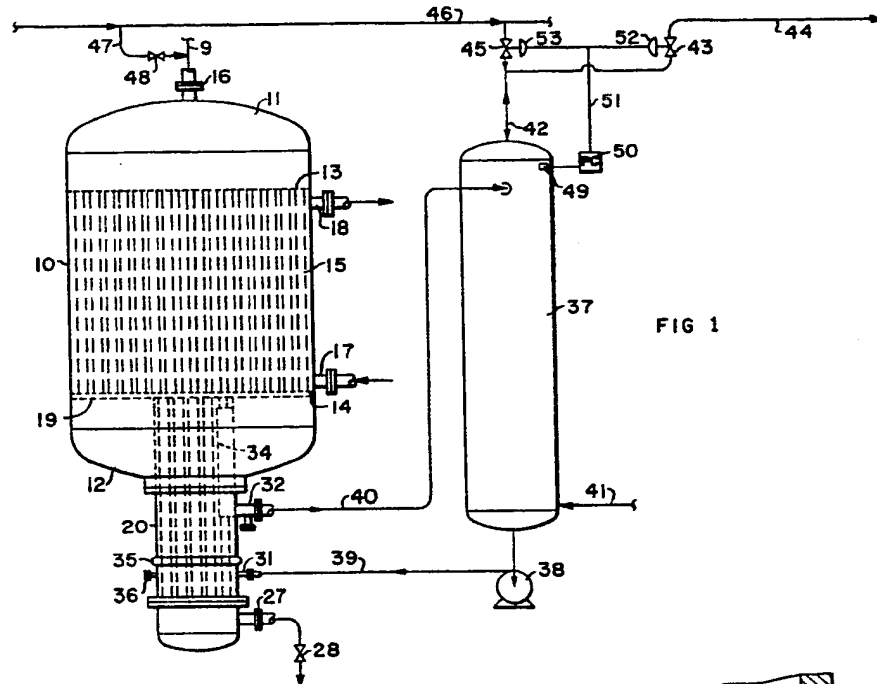
Par procuration :

P. REGIMBEAU & J. CORRE

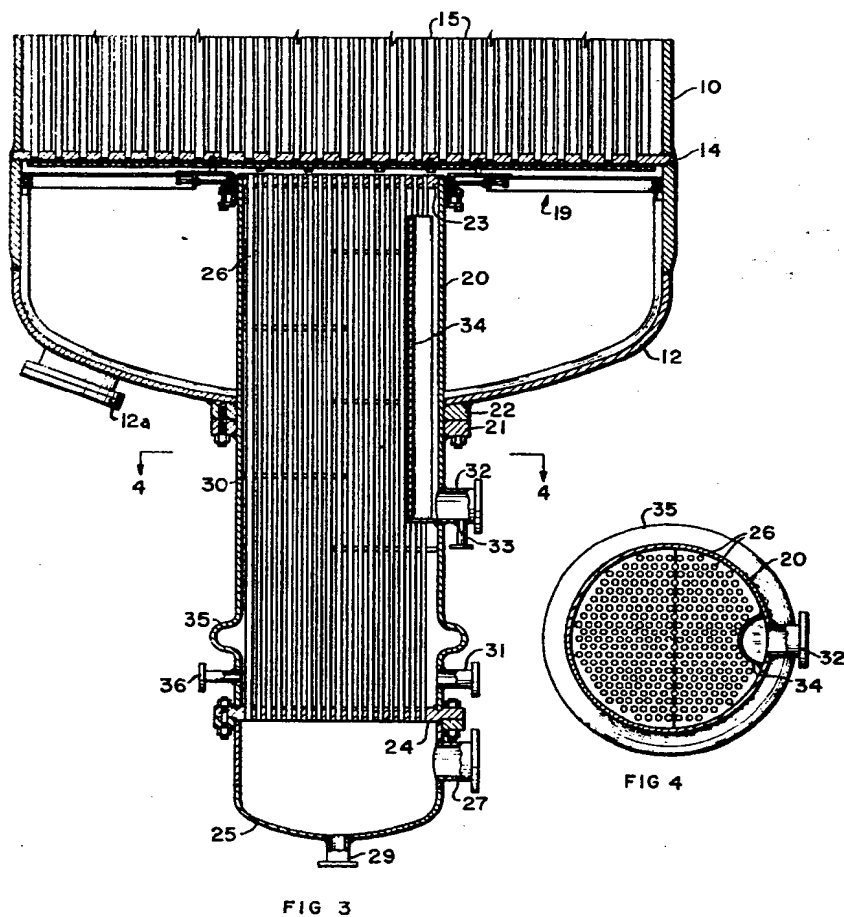
---

Pour la vente des fascicules, s'adresser à l'IMPRIMERIE NATIONALE, 27, rue de la Convention, Paris (15°).

**BEST AVAILABLE COPY**



BEST AVAILABLE COPY



BEST AVAILABLE COPY

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**